

(11)特許出願公開番号

特開平5-166518

(43)公開日 平成5年(1993)7月2日

(51)Int.Cl. ⁵		識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M	8/02	E	9062-4K		
	8/12		9062-4K		
	8/24	Z	9062-4K		

審査請求 未請求 請求項の数14(全 11 頁)

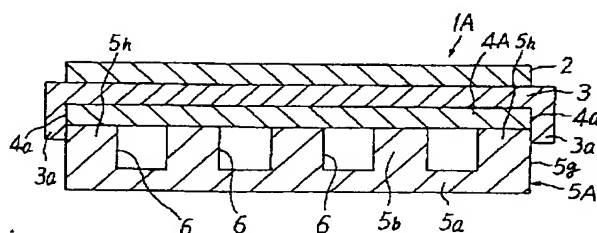
(21)出願番号	特願平3-328697	(71)出願人	000004064 日本碍子株式会社 愛知県名古屋瑞穂区須田町 2 番56号
(22)出願日	平成 3 年(1991)12月12日	(72)発明者	相馬 隆雄 愛知県西加茂郡三好町大字福谷字吉良戸36番地の 1
		(72)発明者	川崎 真司 愛知県名古屋瑞穂区竹田町 2 丁目15番地
		(72)発明者	吉岡 克己 愛知県名古屋瑞穂区竹田町 3 丁目 9 番地 竹田北社宅43号室
		(74)代理人	弁理士 杉村 暁秀 (外 5 名)

(54)【発明の名称】 固体電解質型燃料電池の単電池及びこれを用いた発電装置

(57) 【要約】

【目的】 固体電解質型燃料電池の単位体積当たりの発電量を大きくし、単電池の強度を大きくし、単電池とそのスタックとの信頼性を高め、かつ単電池の生産性を高めることである。

【構成】 セパレータ5Aは、緻密質の電子伝導体からなる。平面四辺形状の平板状本体5aの幅方向縁部の表面に、一対の側壁5hが設けられ、これらの間に隔壁5bが設けられ、一対の側壁5hの間に酸化ガス流路6が設けられる。一対の側壁5h及び隔壁5bに空気電極4が接合され、酸化ガス流路6が覆われる。緻密質の固体電解質3が、空気電極4の表面と幅方向側面4aを覆い、かつセパレータの側壁5hの外壁面5gの一部を覆う。固体電解質3の表面に燃料電極2が設けられる。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 緻密質の電子伝導体からなり、平面四辺形状の平板状本体の幅方向縁部の表面に一对の側壁を備えているセパレータ；このセパレータの前記側壁に接合された空気電極；この空気電極の表面と幅方向側面とを覆い、かつ前記セパレータの側壁の外壁面の一部を覆う、緻密質の固体電解質；及びこの固体電解質の表面に設けられた燃料電極を有し、前記平板状本体と前記一对の側壁と前記空気電極とによって囲まれた空間に導電性の隔壁が設けられ、酸化ガス流路が形成され、前記隔壁が前記平板状本体と前記空気電極とに対して結合されている、固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 2】 前記電子伝導体が電子伝導性セラミックスである、請求項 1 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 3】 前記固体電解質の厚さが $10\mu\text{m}$ 以上、 $500\mu\text{m}$ 以下である、請求項 1 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 4】 前記固体電解質の平面形状が長方形であり、その短辺の長さに対する長辺の長さの比が 2 倍以上である、請求項 1 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 5】 前記酸化ガス流路が前記長辺と平行に延びるように形成され、前記酸化ガス流路をその幅方向に切ってみた断面積が $0.01\sim 2\text{cm}^2$ である、請求項 4 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 6】 前記セパレータの長さ方向の一方の縁部に縁部側隔壁が形成され、これにより前記酸化ガス流路の一端が閉塞され、この酸化ガス流路の他端が開口し、前記縁部側隔壁と前記空気電極とが接し、この空気電極の前記一方の縁部側の側面と前記縁部側隔壁の外壁面の一部とが前記固体電解質によって覆われている、請求項 1 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 7】 前記セパレータの長さ方向の両端において、前記酸化ガス流路が開口し、このセパレータの長さ方向の両端の間で前記酸化ガス流路が導通している、請求項 1 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 8】 前記酸化ガス流路が略直線状であり、前記セパレータの長さ方向の一端から他端へと互いに平行に延びている、請求項 7 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 9】 単電池のうち発電部分においては略直線状の酸化ガス流路が互いに平行に形成されており、単電池のうち酸化ガスを予熱するための予熱部分においては酸化ガス流路が平面的にみて屈曲している、請求項 7 記載の固体電解質型燃料電池の単電池。

【請求項 10】 請求項 1 記載の単電池が複数個互いに所定間隔を置いて配列され、この際複数個の単電池の燃料電極及び開口の向きがほぼ同じになるように配列され、隣り合う単電池の燃料電極とセパレータとが気体の

流通を妨げない構造の耐熱導電体によって直列接続され、隣り合う単電池のセパレータ同士が気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって並列接続され、単電池の酸化ガス流路内に酸化ガスを供給すると共に前記発電室内に燃料ガスを供給できるように構成された発電装置。

【請求項 11】 前記耐熱導電体が、ニッケル製のフェルト状物質又はニッケル製のスポンジ状物質からなる、請求項 10 記載の発電装置。

【請求項 12】 発電装置内に少なくとも燃料ガス室と発電室と燃焼室と酸化ガス室とが設けられ、請求項 6 記載の単電池が複数個互いに所定間隔を置いて配列され、この際複数個の単電池の燃料電極及び開口の向きがほぼ同じになるように配列され、隣り合う単電池の燃料電極とセパレータとが気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって直列接続され、隣り合う単電池のセパレータ同士が気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって並列接続され、前記発電室と前記燃焼室とを区分する隔壁に設けられた単電池挿通孔に各単電池の開口端側が挿入され、各単電池と前記隔壁との間に緩衝材が設けられ、各単電池の開口から前記酸化ガス流路内に酸化ガス供給管が挿入され、前記酸化ガス室内の酸化ガスが前記酸化ガス供給管及び前記酸化ガス流路を通過して前記燃焼室へ流れるように構成され、前記燃料ガス室内の燃料ガスが前記発電室及び前記単電池挿通孔を通過して前記燃焼室へ流れるように構成された、発電装置。

【請求項 13】 発電装置内に少なくとも燃料ガス室と酸化ガス室と発電室と燃焼室とが設けられ、前記発電室が発電領域と予熱領域とに区分され、請求項 7 記載の単電池が前記発電室に複数個互いに所定間隔を置いて配列され、この際複数個の単電池の燃料電極及び開口の向きがほぼ同じになるように配列され、前記発電領域で隣り合う単電池の燃料電極とセパレータとが気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって直列接続され、前記発電領域で隣り合う単電池のセパレータ同士が気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって並列接続され、前記予熱領域において隣り合う単電池間に気体の流通を妨げない構造の断熱材が充填され、前記酸化ガス室と前記予熱領域とが気密性隔壁によって区分され、この気密性隔壁と各単電池との間が気密にシールされ、前記燃料ガス室内の燃料ガスが前記予熱領域及び前記発電領域を通過して前記燃焼室へと流れるように構成され、前記酸化ガス室内の酸化ガスが前記酸化ガス流路を通過して前記燃焼室へと流れるように構成されている、発電装置。

【請求項 14】 前記気密性隔壁と前記単電池との間の気密シールが、 $100^{\circ}\text{C}\sim 500^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で行われるように構成されている、請求項 13 記載の発電装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、固体電解質型燃料電池

の単電池及びこれを用いた発電装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】最近、燃料電池が発電装置として注目されている。これは、燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換できる装置で、カルノーサイクルの制約を受けないため、本質的に高いエネルギー変換効率を有し、燃料の多様化が可能で（ナフサ、天然ガス、メタノール、石炭改質ガス、重油等）、低公害で、しかも発電効率が設備規模によって影響されず、極めて有望な技術である。特に、固体電解質型燃料電池（SOFC）は、1000℃の高温で作動するため電極反応が極めて活発で、高価な白金などの貴金属触媒を全く必要とせず、分極が小さく、出力電圧も比較的高いため、エネルギー変換効率が他の燃料電池にくらべ著しく高い。更に、構造材は全て固体から構成されるため、安定且つ長寿命である。

【0003】上記のように、SOFCの構成材がすべて固体であることから、様々な構造のSOFCが提案されている。これらは、平板型と円筒型とに大別される（エネルギー総合工学13-2、1990）。これらのSOFCの単電池の起電力は、開回路において約1V、電流密度も精々数100mA/cm²程度である為、実使用にあたっては、大きな発電面積を有する単電池を容易に直列、並列に接続できるようにすることが重要である。この観点から、単電池とそのスタック（集合電池）の構造を検討しなければならない。

【0004】しかし、平板型セルにおいては、セラミックスの脆弱性から、平面精度の高い大面積の単電池を作製することは困難であった。これを解決する為に、単セル間の電氣的接続用に柔かい材料を介在させる方法が提案されている（特開平3-55764）。しかし、この方法をもってしても、一体で作製するセラミックス平板の大きさには限界があり、また構造が複雑であるため、単電池間の並列接続が困難で、出力電流量を容易に拡大できない。更に、平板型の単電池では、その端部でガスシールを行うことが困難である。

【0005】これに対して、現在最も製作技術の進んでいるウエスティングハウス社の円筒型セル（エネルギー総合工学13-2、1990年）においては、構造上強度のある円筒型を用いることで、セラミックスの脆弱性を緩和し、さらに単電池の片端を封じた構造にすることでシールレス構造を可能としている。更に、金属性フェルトを用いて直列、並列に容易に接続できる点で優れている。しかし、この構造においては、電流が空気電極内において固体電解質膜に平行に流れる為、電流経路が長く、この過程での電力消費がある。これを解決する為に、円筒断面の周方向以外に電流経路を設ける方法が提案されている（特開昭63-261678）。しかし、これでも固体電解質膜に垂直に電流を流す平板型セル程には、セルの内部抵

抗を低減できない。また、この方法では、円筒状の多孔質支持体の上に、気密質固体電解質膜を設ける必要があるが、この際、EVD法等の高度で生産速度が小さく、製造コストの大きい技術を用いる必要があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、単位体積当たりの発電量を大きくし、ガスシールを容易に行えるようにし、単電池の強度を大きくし、単電池とそのスタックとの信頼性を高め、かつその製造も容易に行なえるようにすることである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、緻密質の電子伝導体からなり、平面四辺形状の平板状本体の幅方向縁部の表面に一对の側壁を備えているセパレータ；このセパレータの前記側壁に接合された空気電極；この空気電極の表面と幅方向側面とを覆い、かつ前記セパレータの側壁の外壁面の一部を覆う、緻密質の固体電解質；及びこの固体電解質の表面に設けられた燃料電極を有し、前記平板状本体と前記一对の側壁と前記空気電極とによって囲まれた空間に導電性の隔壁が設けられ、酸化ガス流路が形成され、前記隔壁が前記平板状本体と前記空気電極とに対して結合されている、固体電解質型燃料電池の単電池に係るものである。

【0008】また、本発明においては、上記の単電池を集合化するのに際し、複数個の単電池を発電室に互いに所定間隔を於いて配列し、この際複数個の単電池の燃料電極及び開口の向きがほぼ同じになるように配列し、隣り合う単電池の燃料電極とセパレータとを、気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって直列接続し、隣り合う単電池のセパレータ同士を、気体の流通を妨げない構造の耐熱導電体によって並列接続し、単電池の酸化ガス流路内に酸化ガスを供給できると共に発電室内に燃料ガスを供給できるように構成する。

【0009】

【実施例】

（実施例1）以下、図1～図8を順次参照しつつ、本発明の実施例について説明する。図2はセパレータ5Aを示す斜視図である。このセパレータ5Aの平面形状は長方形であり、この長方形の長辺の長さsと、短辺の長さとの比は2以上である。

【0010】平面長方形の平板状本体5aの幅方向縁部の表面に、一对の細長い側壁5hが形成されている。これらの側壁5hは、共に四角柱形状であり、セパレータの長さ方向の一端から他端へと向って延びる。一对の側壁5hの間に、四角柱形状の隔壁5bが、長さ方向の一端から他端へと向って、互いに平行に例えば計3列形成されている。セパレータ5Aを長さ方向にみたとき、一方の縁部に四角柱状の縁部側隔壁5cが形成されている。縁部側隔壁5cは、隔壁5b及び側壁5hと連続している。隔壁5b、側壁5hの間に、互いに平行な酸化ガス流路6が計四列形成さ

れている。各酸化ガス流路 6 の一端は縁部側隔壁 5c によって、後述するように閉塞される。各酸化ガス流路 6 の他端は開口している。各隔壁 5b 及び縁部側隔壁 5c の高さは、ほぼ同じに設定されている。

【0011】このセパレータ 5A は、気密質の電子伝導体からなる。更に、このセパレータ 5A は、酸化ガスと燃料ガスとに対して曝されるので、耐酸化性と耐還元性とを備えていなければならない。こうした材料としては、LaCrO₃ セラミックス、酸化ガスにさらされる部分を LaCrO₃ セラミックスで被覆したニッケルジルコニアサーメット等を例示できる。

【0012】図 3 は、電池素子部分を燃料電極 2 の側からみた平面図、図 4 は電池素子部分のみを空気電極 4A の側からみた平面図、図 1 は完成した単電池を示す断面図である。緻密質の固体電解質板 3 の平面形状は、セパレータ 5A の平面形状とほぼ同じである。固体電解質板 3 の表面には、平面長方形の燃料電極膜 2 が形成されている。

【0013】固体電解質 3 の燃料電極 2 と反対側の表面には、やはり平面長方形の空気電極 4A が形成されている。空気電極 4A が存在しない部分では、固体電解質 3 の周縁に沿って、一對の細長い突起 3a と、細長い突起 3b とが形成されている。これらの突起 3a、3b も、固体電解質 3 の一部をなす。空気電極 4A の幅方向側面 4a は、突起 3a によって覆われており、露出しない。空気電極膜 4A の長さ方向の縁部側側面 4b も、突起 3b によって覆われており、露出しない。

【0014】ここで、この単電池の好ましい製造手順について触れる。ここでは図 5 を参照する。空気電極 4A は、ドーピングされたか、又はドーピングされていない LaMnO₃、CaMnO₃、CaNiO₃、LaCoO₃ 等で製造でき、ストロンチウムを添加した LaMnO₃ が好ましい。この空気電極は、あらかじめ気孔率が 20~35% となるように焼成され、別個に準備したセパレータ 5A と接合される。接合の際には、空気電極 4A と隔壁 5b、5c 及び側壁 5h とを向い合わせる。隔壁 5b、5c、側壁 5h の表面に、接合用のセラミックス粉末層 8 を設ける。セラミックス粉末層 8 の材質は、空気電極 4A の材質か、セパレータ 5A の材質が提案される。そして各隔壁 5b、5c、側壁 5h をそれぞれ空気電極 4A に当接させた状態で加熱処理し、空気電極、インターコネクター（セパレータ）からなる積層体を得る。

【0015】固体電解質 3 は、前記空気電極 4A、セパレータ積層体の空気電極及び空気電極とセパレータの界面を覆う様に、前記したような形状で形成される。形成法としては、溶射法が提案される。燃料電極膜 2 は図 3 に示す様に固体電解質 3 の表面に形成される。これにより、図 1、図 6 に示す単電池 1A を作製できる。

【0016】この単電池 1A においては、酸化ガス流路 6 の一端が縁部側隔壁 5c によって閉塞される。細長い突起 3a によって、空気電極 4A の幅方向側面 4a と、セパレータ

5A の幅方向外壁面 5g の一部とが覆われる。細長い突起 3b によって、空気電極 4A の長さ方向の縁部側の側面 4b と、縁部側隔壁 5c の外壁面の一部とが覆われる。酸化ガス流路 6 と空気電極 4A の側面 4a、4b とは、いずれも気密質であるセパレータ 5A と固体電解質 3 とによって包囲されている。従って、酸化ガス流路 6 の開口以外から、酸化ガスが漏れることはない。

【0017】次に、上記の単電池を集合してなる発電装置の構成例について述べる。図 7 は、こうした発電装置を単電池の長さ方向に切ってみた一部断面図である。図 8 は、図 7 の発電装置を単電池の幅方向に切ってみた部分断面図である。発電装置全体は、略直方体状の缶 10 内に収容されている。缶 10 の内部には、燃料ガス室 18、発電室 17、燃焼室 16、酸化ガス室 15 が設けられている。缶 10 の貫通孔 10c が燃料ガス室 18 に連通し、貫通孔 10b が酸化ガス室 15 に連通し、貫通孔 10a が燃焼室 16 に連通する。

【0018】燃料ガス室 18 と発電室 17 とは隔壁 14 によって区分される。隔壁 14 には、一定間隔で燃料ガス供給孔 14a が設けられている。発電室 17 と燃焼室 16 とは隔壁 12 によって区分される。隔壁 12 には、一定間隔で単電池挿通孔 12a が形成される。燃焼室 16 と酸化ガス室 15 とは隔壁 11 によって区分される。隔壁 11 には、一定間隔で貫通孔 11a が形成される。

【0019】各単電池 1A は発電室 17 内に収容され、単電池 1A の端部が隔壁 14 に、アルミナフェルト等の絶縁性セラミックスフェルト材を介して当接する。各単電池 1A の開口 8 側の端部は、各単電池挿通孔 12a を貫通し、燃焼室 16 に露出する。この結果、各酸化ガス流路 6 は、燃焼室 16 と連通する。単電池挿通孔 12a と単電池 1A の外周面との間には、単電池挿通孔 12a のほぼ全周に亘って若干の隙間が開いており、この隙間に、緩衝材 13 が充填されている。この結果、各単電池 1A の端部が、緩衝材 13 を介してゆるく保持される。緩衝材 13 としては、例えば、アルミナフェルト等のセラミックスフェルト材が好ましい。

【0020】缶 10 の発電室 17 の底には、平板状の集電板 19 が設置され、集電板 19 の上に集電材層 20 が設けられている。単電池 1A は、本実施例では、上下方向と左右方向とに、それぞれ一定間隔を置いて延びるように配置されている。ただし、図 8 においては、図面の寸法上の制約から、こうした集合電池のうち下方の 3 列のみを図示し、かつ左側の 2 列のみを図示した。むろん、こうした集合電池中に含まれる単電池 1A の個数は、適宜選択できるものである。

【0021】発電室 17 内において最下端の単電池 1A は、集電材層 20 の上に載置される。集電材層 20 は、単電池 1A の形状や変形に追従させるため、弾性と可塑性とを有するものがよい。最下端の単電池 1A の上に、所定間隔を置いて順次他の単電池 1A を配置し、上下の単電池 1A の燃料

電極 2 と平板状本体 5a とを対向させる。これらの間に、略平板形状の耐熱導電体 21A を挿入し、上下方向に隣り合った単電池 1A の燃料電極 2 と平板状本体 5a とを電氣的に接続する。また、図 8 において左右方向に隣り合う単電池 1A の間に、細長い耐熱導電体 21B を挿入する。これにより、単電池 1A のセパレータ 5A 同士を電氣的に接続する。各耐熱導電体 21A と 21B は、接触しないようにする。

【0022】隔壁 11 の貫通孔 11a とほぼ同じ内径を有する円筒状の供給管 9 が、隔壁 11 に一定間隔で固定される。各供給管 9 の内側空間は、それぞれ貫通孔 11a を介して酸化ガス室 15 に連通する。各供給管 9 は、燃焼室 16 を横切り、開口 8 を通って酸化ガス流路 6 内に挿入され、平板状本体 5a 上に支持される。各供給管 9 の先端にある供給口が、縁部側隔壁 5c と若干の距離を置いて対向する。

【0023】次に、図 7 を参照しつつ、この発電装置の動作について述べる。酸化ガスは、缶 10 の外部から、貫通孔 10b を通して矢印 A のように供給され、酸化ガス室 15 を通り、貫通孔 11a から矢印 B のように供給管 9 内へと送られる。次いで、この酸化ガスは、矢印 C のように供給管 9 内を流れ、供給口から矢印 D のように酸化ガス流路 6 内へと供給される。そして、この酸化ガスはすぐに縁部側隔壁 5c に衝突して矢印 D のように方向転換し、空気電極 4A と供給管 9 との間を流れ、開口 8 から燃焼室 16 へと排出される。

【0024】一方、燃料ガスは、缶 10 の外部から、矢印 E のように貫通孔 10c を通って燃料ガス室 18 内へと供給され、更に燃料ガス供給孔 14a を通って矢印 F のように発電室 17 内に供給される。そして、主として耐熱導電体 21A、21B の中を通り抜け、更に緩衝材 13 を矢印 G のように通り抜けて、燃焼室 16 内に排出される。発電装置の動作時には、空気電極 4A と固体電解質 3 との界面で酸化ガスが酸素イオン等を生じ、これらの酸素イオン等が固体電解質 3 を通って燃料電極 2 へと移動し、燃料ガスと反応すると共に電子を燃料電極 2 へと放出する。そして、正極である空気電極 4A と負極である燃料電極 2 との間に電位差が生ずる。こうした単電池を前記したように直列接続、並列接続し、最終的に集電板 19 から電力を取り出す。

【0025】発電室 17 と燃焼室 16 との間では、僅かの差圧で燃焼室 16 へと燃料ガスの流れが生ずるように設計されており、燃焼室 16 から発電室 17 への逆流を防いでいる。発電室 17 を通過した燃料ガスには、反応によって生成した水蒸気、炭酸ガス等が含まれており、かつその燃料含有量も減少している。この減損した燃料ガスが、同様に減損した排酸化ガスと燃焼室 16 内で燃焼する。この燃焼熱により、供給管 9 内を流れている新鮮な酸化ガスを予熱できる。貫通孔 10a から、矢印 H のように燃焼排ガスを排出する。燃料ガスとしては、水素、改質水素、

一酸化炭素、炭化水素等の燃料を含むガスを用いる。酸化ガスとしては、酸素を含むガスを用いる。

【0026】本実施例によれば、以下の効果を奏しうる。

(1) 電池素子 7A が平板状であるので、例えば、現在最も実用性が高いと言われる SOFC である円筒型 SOFC (特開昭 57-11356 号公報等) にくらべて、格段に発電面積を大きくでき、単位体積当たりの発電量を増大させることができる。

【0027】(2) 固体電解質 3 を成形する際、プラズマ溶射法を使用できる。即ち、円筒型の単電池を製造する場合のように、固体電解質を EVD で設ける必要はない。従って、こうした従来法にくらべ、固体電解質膜の生産性を上げ、コストを下げるができる。こうした意味で、固体電解質 3 の厚さは 10 μm 以上、500 μm 以下とすることが好ましく、50 μm 以上、100 μm 以下とすると更に好ましい。

【0028】(3) セパレータ 5A に隔壁 5b が設けられ、各隔壁 5b が空気電極 4A に連結されている。これにより、空気電極 4A から隔壁 5b を通る電流経路が発生するので、空気電極 4A 内を膜と平行に流れる距離が格段に短縮される。この結果、特に空気電極 4A 内における内部抵抗が低減されるので、単電池出力が向上する。

【0029】(4) 上記のように、各隔壁 5b が平板状の電池素子に対して接合されているので構造強度が大きい。従って、単電池のレベルで見ても、集合電池のレベルで見ても、信頼性が高くなった。この理由は、単電池 1A が、マルチチャンネル構造、即ち、小さな四角筒状部を幾つか合体させたような構造を備え、緻密なセラミックス等を実質的な支持体としているからである。

【0030】(5) 前述したように、発電室 17 の圧力を燃焼室 16 の圧力よりも大きくして燃料ガスを一方向に流す。また、酸化ガスについても、酸化ガス流路 6 から燃焼室 16 へと一方向的に流している。従って、単電池 1A の四周を単電池挿通孔 12a において気密かつリジッドにシールする必要がない。このために単電池 1A には固定、シールに起因する歪応力の発生が少なく、構造体としての信頼性が向上する。

【0031】(6) しかも、各単電池 1A の保持と位置決めとを、気体の流通を妨げない耐熱導電体 21A、21B と、緩衝材 13 とによりソフトに行っている。これにより、単電池 1A が熱膨張しても、単電池 1A にかかる応力が一層小さくなる。

【0032】(7) 燃料ガス室 18 と燃焼室 16 との間に発電室 17 が設けられているので、酸化ガスは、燃焼室 16 において、既に減損した水蒸気等の多い廃燃料ガスと接触する。従って、開口 8 付近で、局部的で急激な燃焼と発熱とが発生することはない。従って、これに伴って単電池端部で亀裂が生ずるおそれはない。

【0033】(実施例 2) 図 9 は、他の単電池 1B を幅方

向に切ってみた、図1と同様の断面図である。このうち、固体電解質3、燃料電極膜2の構成、製造法は実施例1と同様である。空気電極4Bとセパレータ5Bについては形状が実施例1と異なる。すなわち、セパレータ5Bの平板状本体5aの幅方向の両縁に、それぞれ側壁5hが設けられる。また空気電極4Bには、複数列の隔壁4cが設けられる。これらを接合することによって、側壁5hと隔壁4cの間、隣り合う隔壁4cの間に、それぞれ酸化ガス流路6が形成される。こうした幅方向断面を有する単電池1Bの他の部分の構成は、単電池1Aの構成と同じにすることができる。

【0034】(実施例3)本実施例においては、酸化ガス流路が双方向的に開口しているタイプの単電池と、こうした単電池の新たな集合形態について説明する。図10は、セパレータ5Cを示す斜視図であり、図11は単電池1Cをその長さ方向に切って見た断面図である。

【0035】このセパレータ5Cにおいては、平板状本体5aの表面に、一対の側壁5hと、例えば3列の隔壁5bが互いに平行に形成されている。本例では、各隔壁5b、側壁5hがセパレータ5Cの長さ方向の一端から他端まで延びてい

る。各隔壁5bはいずれも四角柱形状であり、隔壁5b、側壁5hの間に、やはりいずれも四角柱形状の酸化ガス流路6が形成されている。各酸化ガス流路6は、セパレータ5Cの長さ方向の一端から他端まで、直線状に延びている。図10において、24は後述する予熱領域を示し、25は後述する発電領域を示す。

【0036】空気電極4Aは、セパレータ5Cとほぼ同じ平面形状を備え、隔壁5b、側壁5hの表面に接合されている。空気電極4Aの表面に固体電解質23が設けられ、固体電解質23の表面に燃料電極2が設けられる。この単電池1Cの幅方向断面形状は、図1に示した単電池1Aと同じである。単電池1Cの長さ方向の両端において、酸化ガス流路6が開口している。空気電極4Aは、セパレータ5Cの幅方向においては固体電解質23によって覆われるが(図1と同じ)、セパレータ5Cの長さ方向の両端においては、固体電解質23によって覆われてはいない。これらの開口部分は、酸化ガス室か燃焼室に露出するので、多孔質の空気電極4Aの表面を緻密質材料で覆わなくともよい。

【0037】図12は、こうした単電池1を集合してなる発電装置の一部分を示す断面図である。図面の寸法の制約から、図12においては、本発電装置のうち下側の3列のみを図示する。

【0038】緻密質材料からなる略直方体形状の缶30の相対向する側壁に、貫通孔30aと30bとが設けられる。この缶30の内部には、図面において右側から順番に、燃料ガス室37、酸化ガス室38、発電室40、燃焼室39が設けられる。燃料ガス室37と酸化ガス室38とは気密性の隔壁33によって区分され、酸化ガス室38と発電室40とは気密性隔壁34によって区分され、発電室40と燃焼室39とは隔壁36によって区分されている。

【0039】発電室40は、予熱領域24と発電領域25に分けられる。予熱領域24は隔壁34側にあり、発電領域25は隔壁36側にある。燃料ガス室37を供給管31が横断し、供給管31の内部空間が酸化ガス室38に連通する。気密性隔壁34には、貫通孔34aと単電池挿通孔34bとが形成されている。酸化ガス室38を供給管32が横切っており、各供給管32の内部空間が燃料ガス室37に連通している。各供給管32の内径は貫通孔34aの内径とほぼ同じであり、各供給管32が貫通孔34aに位置合わせされている。各貫通孔34aは予熱領域24に面している。

【0040】単電池挿通孔34bの形状及び寸法は、単電池1Cの幅方向の形状及び寸法とほぼ同じである。図面表示の都合上、図12においては、一つの単電池1Cについては断面図を示し、二つの単電池1Cについては正面図を示してある。このため、図12においては、貫通孔34bのうち一つを断面で示し、他の二つを点線で示してある。各単電池挿通孔34bは、貫通孔34aの間に規則的に設けられている。隔壁36にも、単電池挿通孔36aが、所定間隔を置いて規則的に設けられている。各単電池挿通孔36aの寸法は、単電池1Cの幅方向寸法よりも若干大きくなっている。

【0041】各単電池1Cの一端は単電池挿通孔34b内に挿通され、他端が単電池挿通孔36aに挿通される。これにより、各単電池1Cが、隔壁34と36との間に架け渡される。単電池1Cと単電池挿通孔34bとの間は、気密にシールし、燃料ガスや酸化ガスがここから漏れないようにしなければならない。こうした気密シールを行うには、ガスケットを用いるか、又は有機樹脂で両部材の隙間を封じする方法が提案される。

【0042】単電池挿通孔36aの周面と単電池1Cの外周との間には、単電池挿通孔36aの全周に亘って、若干の隙間がある。この隙間に、気体の流通を妨げない緩衝材13が充填されている。単電池1Cの図面において左側の端部は、緩衝材13を介して、隔壁36によりゆるく支持される。

【0043】予熱領域24においては、上下方向及び左右方向に隣り合う各単電池1Cの間の空間に、通気性断熱材35が充填されている。従って、これらの断熱材35は、単電池の支持材料としても機能する。

【0044】発電領域25においては、図8に示したものと同一構成になっている。即ち、上下方向に隣り合った単電池1Cの燃料電極2とセパレータ5Cとが、耐熱導電体21Aによって電気的に接続されている。最下端の単電池1Cのセパレータ5Cは、耐熱導電体21Aを介して、集電板19Aに電気的に接続されている。

【0045】この発電装置の動作を説明する。燃料ガスは、貫通孔30aから燃料ガス室37内に矢印Iのように供給され、供給管32内に矢印Jのように送り込まれる。次いで、この燃料ガスは、供給管32、貫通孔34aを通過し、予熱領域24を通過し、更に発電領域25を流れ、矢印

Kのように緩衝材13を通過し、燃焼室39に入る。

【0046】一方、酸化ガスは、矢印Lのように供給管31内を通過し、酸化ガス室38内に入り、次いで、矢印Mで示すように、酸化ガス流路6内に流入する。そして、この酸化ガスは、予熱領域24、発電領域25を順次通過し、矢印Nのように燃焼室39内に流出する。燃焼室39において、減損した燃料ガスと減損した酸化ガスとが燃焼される。貫通孔30bから、矢印Pのように、燃焼排ガスが排出される。

【0047】本実施例に係る単電池及び発電装置においても、実施例1で述べた(1)～(7)の効果を奏することができる。ただし、本発電装置では、単電池1Cの図12において右側の端部はリジッドに固定している。

【0048】更に重要なことに、本実施例で用いる単電池1Cにおいては、酸化ガス流路6の一端が封じられておらず、その両端が開口している。しかも、セパレータ5Cが押し出し成形等によって比較的容易に成形可能な形をしている。仮に、酸化ガス流路6の一端を封じるものとする、こうしたセラミックス加工は難しく、封じた部分に十分な強度を与えることがかなり困難になる。このため、生産技術の点からは、単電池1Cが非常に有利である。

【0049】また、図12に示すような構成の発電装置を提供することで、単電池1Cを集積化し、動作させることが可能となった。こうした構成の発電装置は、非常に特徴があるので、その作用等を更に詳しく説明する。固体電解質型燃料電池を動作させるに当って重要なことは、燃料ガスと酸化ガスとを分離することである。このためには、各部材を気密にシールしなければならない。こうした気密シールを行うには、ガスケットや有機封止材などを用いる方法がある。

【0050】しかし、発電室内の温度は、動作時には1000℃にも上る。このような高温下においては、上述のような気密シール材を用いることが難しい。こうした気密シール材は、高々500℃位までしか耐えられないからである。このため、図7に示すような構造の発電装置においては、上述のような気密シールを不要にしたシールレス構造を採用する。こうしたシールレス構造を実現するには、縁部側隔壁5cによって単電池1Aの一端を封じなければならない。

【0051】これとは異なり、本実施例の発電装置においては、隔壁34と単電池1Cの端部との間で、気密なシールを実施する。隔壁36側では、燃料ガスを流すために、気密シールは施さない。この際、発電領域25では、1000℃程度の高温となる。そこで、隔壁34と発電領域25との間に断熱材35を配置し、予熱領域24を形成したわけである。むろん、予熱領域24内では隔壁34へと近づくにつれて急速に温度が下がる。隔壁34において上述のような気密シールを行うには、このシール部分の温度を、発電領域25内よりもかなり低温に、好ましくは500℃以下にし

なければならない。更に、350℃以下では、樹脂製シール材の選択種が広がる。しかし100℃以下にするには、予熱領域24を長くする必要が生じ、単位体積当たりの発電量が減る。従って、100～350℃が最も好ましい範囲である。この一方、燃料ガス及び酸化ガスは、予熱領域24を通過する間に、共に予熱されることになる。

【0052】本実施例において、断熱材35の材質は、以下のものが好ましい。多孔質アルミナブロック、アルミナフェルトを重ねたもの、あるいはこれらの複合体。上記の例では、単電池1Cの端部を単電池挿通孔34bに挿通した。しかし、この代りに単電池1Cの末端面を気密性隔壁34に当接させ、両者の間を気密にシールしてもよい。ただしこの場合も、気密性隔壁34に、酸化ガスのための孔を設ける必要がある。

【0053】図11に示す単電池では、酸化ガス流路6には何も障害物を設けていない。しかし、予熱領域24においては、酸化ガスを発電のために消費してはいない。そこで、図13に示すように、予熱領域24において、通気性の断熱材26を充填することができる。こうした断熱材26としては、セラミックス多孔体、セラミックスファイバー等が好ましい。通気性の断熱材26を予熱領域24に充填することにより、発電領域25内の高温を効果的に吸収して断熱効果を上げ、気密シール部分の温度を一層引き下げることができる。これと共に、熱を吸収した断熱材26を酸化ガスが通過する間に、酸化ガスを一層効果的に予熱できる。断熱材26がない場合に比べて、酸化ガスの流れる距離が長くなるからである。

【0054】また、図14に示すようなセパレータ5Dを用いることもできる。このセパレータ5Dでは、セパレータの幅方向の両縁部の表面に、一対の側壁5hが互いに平行に形成されている。発電領域25においては、一対の側壁5hの内側に、例えば計3列の四角柱状の隔壁5dが、セパレータの長さ方向に向かって互いに平行に形成されている。この発電部分では、酸化ガス流路6が、互いに平行に4列設けられている。

【0055】予熱領域24においては、酸化ガス流路が複雑に屈曲している。まず、単電池の予熱部分の入口側からみると、まずセパレータ5Dの幅方向に延びる四角柱形状の隔壁5fが、セパレータ5Dの一端から発電領域の方へと向って、計3列形成されている。各隔壁5fは、互いに対して平行であり、かつセパレータ5Dの長さ方向に対して垂直である。各隔壁5fの一端は、一対の側壁5hのうちのいずれかと一体化しており、その他端は、側壁5hと若干の隙間を残している。三列の隔壁5fの間に酸化ガス流路6Aが形成される。この酸化ガス流路6Aは、側壁5hの間で大きく蛇行する。

【0056】隔壁5fと5dとの間には、計4個の直方体状の隔壁5eが形成されている。計4個の幅の小さい隔壁5eは、セパレータ5Dの幅方向へと向って一列に並び、このうちの二つはそれぞれ側壁5hに一体化している。隔壁5e

の間には、短い酸化ガス流路6Bが、計3箇所形成されている。

【0057】本実施例では、予熱領域24において、酸化ガス流路が蛇行し、屈曲しているため、酸化ガス流路が直線状の場合にくらべて、酸化ガスの流通距離がかなり長くなる。従って、酸化ガスの予熱を効果的に行える。ただし、図14に示すようなセパレータ5Dには押し出し成形などは適用できないので、生産性の点では、図13のものにくらべるとかなり落ちる。

【0058】上記の実施例においては、平面形状が長方形の単電池を用いた。しかし、単電池の平面形状を平行四辺形にしてもよい。この場合も、その短辺の長さに対する長辺の長さの比は、2倍以上とすることが好ましい。各酸化ガス流路をその幅方向に切ってみた断面積は、 $0.01 \sim 2 \text{ cm}^2$ とすることが好ましい。これは、断面積が 0.01 cm^2 以下では酸化ガス導入管を設けることが困難となるためである。一方、 2 cm^2 以上では単電池内における酸化ガス容量が大きいため、必要以上に多量の酸化ガスを導入する必要が生ずるためである。

【0059】気体の流通を妨げない耐熱導電体は、耐熱金属繊維を編んで作ったフェルト状物質とするか、多数の開気孔を有するスポンジ状物質とするのが好ましい。これらの材質としては、ニッケルが好ましい。上記のスポンジ状物質を作製するには、例えば、耐熱金属粉末と発泡剤とバインダーとを混練し、成形、焼成すればよい。

【0060】

【発明の効果】本発明によれば、電池素子が平板状であるので、円筒型SOFCにくらべて、格段に発電面積を大きくでき、単位体積当りの発電量を増大させることができる。また、固体電解質は、溶射法等で成形できるので、EVD等を用いて固体電解質膜を形成する必要のある円筒型SOFCにくらべ、固体電解質の生産性を上げ、コストを下げるができる。

【0061】更に、緻密質の電子伝導体からなるセパレータに一对の側壁を設け、これらの間に酸化ガス流路を形成し、空気電極によって酸化ガス流路を覆い、前記一对の側壁に空気電極を接合させている。そして、導電性の隔壁が、平板状本体と空気電極とに対して結合されている。これにより、空気電極から隔壁を通る電流経路が発生するので、空気電極を膜と平行に流れる距離が格段に短縮される。この結果、特に空気電極内における内部抵抗が低減されるので、単電池出力が向上する。しかも、一对の側壁以外に隔壁が平板状の電池素子に対して接合されており、かつ隔壁も緻密な材料で形成されているので、従来の平板型SOFCにくらべて、単電池の構造強度が飛躍的に向上し、スタックとしての信頼性も高まった。

【図面の簡単な説明】

【図1】単電池1Aを幅方向に切った断面図である。

(8)

特開平5-166518

【図2】セパレータ5Aの斜視図である。

【図3】電池素子部分を燃料電極2側から見た平面図である。

【図4】電池素子部分を空気電極4A側から見た平面図である。

【図5】空気電極4Aとセパレータ5Aとを接合する前の状態を示す断面図である。

【図6】単電池1Aの閉塞端部の周辺を示す断面図である。

【図7】発電装置の一部分を単電池の長さ方向に切った見た一部断面図である。

【図8】図7の発電装置の一部分を単電池の幅方向に切った断面図である。

【図9】他の単電池1Bを幅方向に切った断面図である。

【図10】セパレータ5Cを示す斜視図である。

【図11】単電池1Cをその長さ方向に切った断面図である。

【図12】他の発電装置の一部分を、単電池1Cの長さ方向に切った見た一部断面図である。

【図13】通気性の断熱材26をセパレータ5Cの酸化ガス流路内に充填した状態を示す斜視図である。

【図14】セパレータ5Dを示す斜視図である。

【符号の説明】

- 1A, 1B, 1C 単電池
- 2 燃料電極
- 3, 23 固体電解質
- 4A, 4B 空気電極
- 4a 空気電極の幅方向側面
- 4b 縁部側の側面
- 5A, 5B, 5C, 5D セパレータ
- 5a 平板状本体
- 4c, 5b, 5d, 5e, 5f 導電性の隔壁
- 5c 縁部側隔壁
- 5g セパレータの側壁の外壁面
- 5h 一对の側壁
- 6, 6A, 6B 酸化ガス流路
- 8 開口
- 9 酸化ガス供給管
- 10, 30 缶
- 11, 12, 14, 33, 34 気密性の隔壁
- 13 緩衝材
- 15, 38 酸化ガス室
- 16, 39 燃焼室
- 17, 40 発電室
- 18, 37 燃料ガス室
- 21A, 21B 耐熱導電体
- 24 予熱領域
- 25 発電領域
- 26 通気性の断熱材

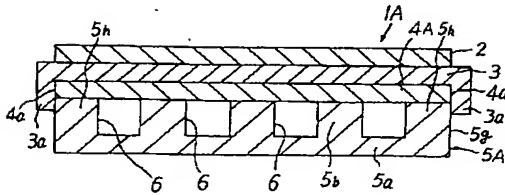
15

A, B, C, D, L, M, N 酸化ガスの流れ
E, F, G, I, J, K 燃料ガスの流れ

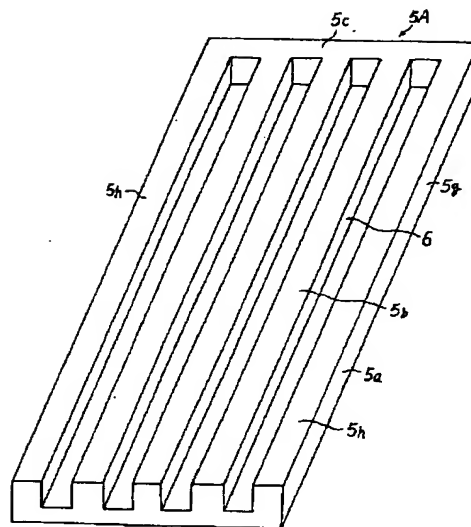
16

H, P 燃焼排ガスの流れ

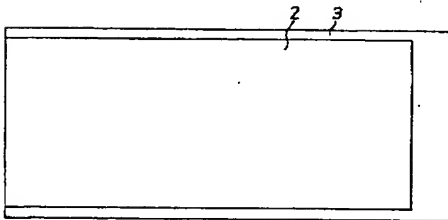
【図 1】



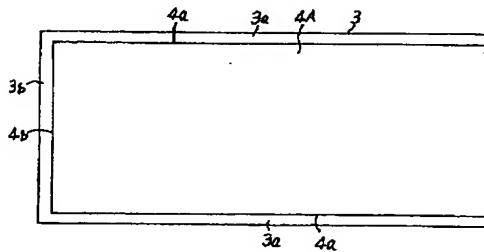
【図 2】



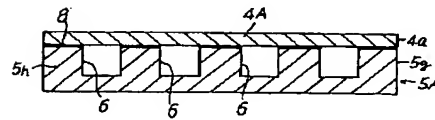
【図 3】



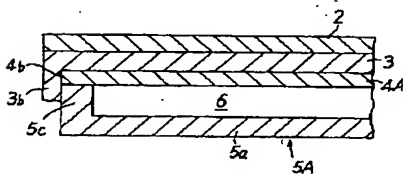
【図 4】



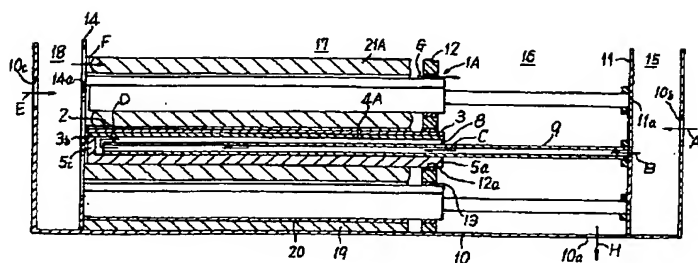
【図 5】



【図 6】

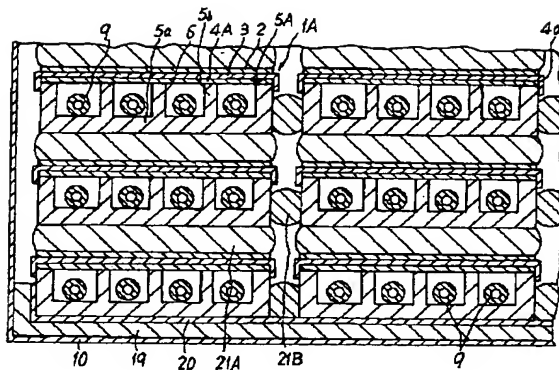


【図 7】

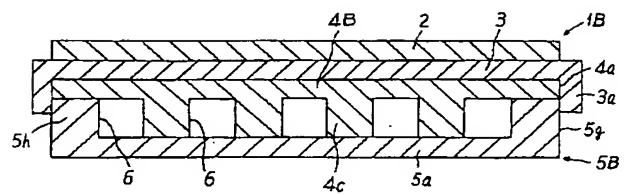


AVAILABLE COPY

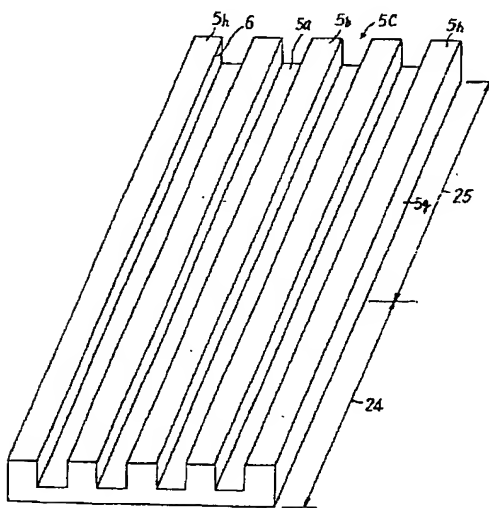
【図 8】



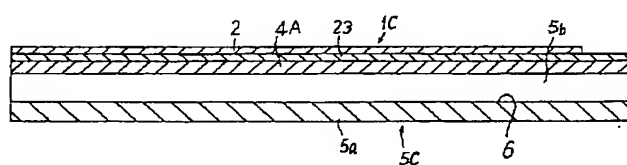
【図 9】



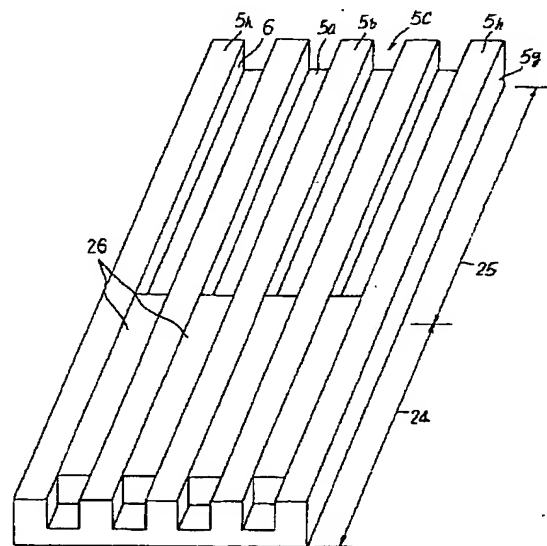
【図 10】



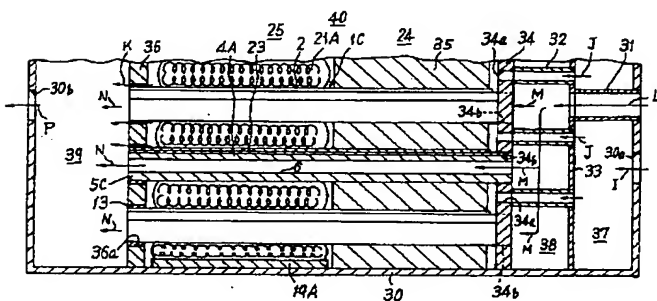
【図 11】



【図 13】



【図 12】



【図 14】

